



Doctoral Thesis

Experimental study on immersion freezing of size selected mineral dust particles

Author(s):

Lüönd, Felix

Publication Date:

2009

Permanent Link:

<https://doi.org/10.3929/ethz-a-005982778> →

Rights / License:

[In Copyright - Non-Commercial Use Permitted](#) →

This page was generated automatically upon download from the [ETH Zurich Research Collection](#). For more information please consult the [Terms of use](#).

DISS. ETH NO. 18666

Experimental Study on Immersion Freezing of Size Selected Mineral Dust Particles

A dissertation submitted to the

ETH ZURICH

for the degree of

Doctor of Sciences

presented by

FELIX LÜÖND

Dipl. Phys. ETH Zürich

born 22 November 1980

citizen of Sattel (SZ)

accepted on the recommendation of

Prof. Dr. Ulrike Lohmann, examiner

Dr. Olaf Stetzer, co-examiner

Dr. Frank Stratmann, co-examiner

2009

Abstract

Atmospheric ice nucleation has a large influence on the hydrological cycle and cloud radiative properties. In mixed-phase clouds occurring at temperatures between 0°C and roughly -40°C , ice predominantly nucleates by one of the four heterogeneous modes of ice nucleation involving the presence of an insoluble ice nucleus (IN). These modes are contact freezing, immersion freezing, condensation freezing and deposition nucleation. Although heterogeneous ice nucleation has been extensively studied in the past, there is still a lack in understanding which intrinsic properties define the efficiency of an IN. Often, different modes of ice nucleation cannot be separated in an experiment, and a variety of experimental techniques leads to a large scatter in the measured data.

In the present thesis, a new instrument has been developed, based on the principle of a continuous flow diffusion chamber (CFDC), to measure ice nucleation in the immersion mode with single immersed aerosol particles. The “immersion mode cooling chamber” (IMCA) produces cloud droplets with single immersed particles by cloud droplet activation of aerosol particles, and gradually cools them to the experimental temperature at which the frozen fraction of the droplets is measured. IMCA is coupled to the Zurich ice nucleation chamber (ZINC) which keeps the experimental temperature constant at a relative humidity close to water saturation. Water saturation is established to prevent droplets from evaporating before reaching the detector. The frozen fraction of droplets is measured at the bottom of ZINC by the “ice optical detector device” (IODE), a recently developed depolarization detector. Droplet activation of the aerosol particles occurs in the warm part of IMCA where supersaturation with respect to liquid water is established by applying different temperatures to both humidified chamber walls. Computational fluid dynamics (CFD) simulations have been performed to find suitable chamber dimensions and experimental parameters to grow nucleated droplets large enough that they do not evaporate in subsaturated zones before reaching the detector.

First experiments with IMCA on freezing of cloud droplets in the immersion mode have been successfully conducted. Experiments with size selected kaolinite particles between 200 nm and 800 nm in diameter have yielded median freezing temperatures between -35°C for 200 nm particles and -33°C for 800 nm particles. The influence of particle size is not very strong, but clearly discernable. Above the median freezing temperature, the decrease of the frozen fraction of cloud droplets is slower than expected from nucleation theory. This gives rise to the conjecture that there is a small contribution from deposition nucleation to the ice crystals identified by the detector. Although calculation of the droplet evolution based on the CFD simulations does not predict droplets to evaporate before reaching the detector, a certain amount of unactivated aerosol particles is likely to be present in the experiment and nucleate ice in the deposition mode. This contradiction to the calculation is probably due to the simplified assumption of immediate droplet nucleation at the top of IMCA. The contribution of deposition nucleation has been estimated and subtracted from the measured ice crystals to isolate immersion freezing.

The measured frozen fraction of droplets has been fitted to nucleation theory using models with differing description of the IN surface. Whereas a model assuming a constant contact angle between IN and ice embryo for all IN poorly represent the data, best fits have been obtained with models distributing active sites, i. e. preferential sites for nucleation, of different efficiency on the IN surface. The resulting fits suggest that the dependence of IN efficiency on particle size is not only based on the larger surface area of larger particles, but also on the higher probability for active sites of high efficiency on a larger surface area. More experiments assessing the time dependence of freezing are required to decide whether

such a model is preferentially based on classical nucleation theory (CNT) or if a simpler deterministic model can be used to describe immersion freezing.

Zusammenfassung

Eisnukleation in der Atmosphäre hat einen starken Einfluss auf den hydrologischen Zyklus und auf die Strahlungseigenschaften von Wolken. In Mischphasenwolken, die bei Temperaturen zwischen 0°C und ungefähr -40°C auftreten, bilden sich Eiskristalle vorwiegend durch einen der vier heterogenen Eisnukleations-Mechanismen, die jeweils die Anwesenheit eines unlöslichen Eiskeims (IN) voraussetzen. Zu diesen Mechanismen zählen Kontaktgefrieren, Immersionsgefrieren, Kondensationsgefrieren und Depositionsnukleation. Obwohl heterogene Eisnukleation schon ausführlich untersucht wurde, ist das Verständnis davon, welche spezifischen Eigenschaften die Effizienz eines IN bestimmen, nach wie vor lückenhaft. Oftmals können einzelne Eisnukleations-Mechanismen in einem Experiment nicht voneinander getrennt werden, und eine Vielfalt an experimentellen Methoden führt zu einer beträchtlichen Streuung der Messdaten.

In dieser Arbeit wurde ein neues Gerät entwickelt, um das Immersionsgefrieren von Wolkentröpfchen mit je einem Aerosolpartikel pro Tröpfchen zu untersuchen. Die “immersion mode cooling chamber” (IMCA) basiert auf dem Prinzip einer Diffusionskammer mit kontinuierlichem Durchfluss. Sie generiert Wolkentröpfchen mit einzelnen Partikeln mittels Wolkentröpfchen-Aktivierung der Partikel, und kühlt die Tröpfchen graduell zu einer Temperatur, bei der der gefrorene Anteil der Tröpfchen gemessen wird. Die IMCA-Kammer ist vertikal an die “Zurich ice nucleation chamber” (ZINC) gekoppelt, welche diese Temperatur bei einer relativen Feuchte nahe der Wassersättigung konstant hält. Diese Feuchte ist notwendig, um zu verhindern, dass die Tröpfchen verdunsten, bevor sie den Detektor erreichen. Der gefrorene Anteil der Tröpfchen wird am unteren Ende von ZINC mittels dem kürzlich entwickelten Depolarisations-Detektor IODE (ice optical detector device) ermittelt. Tröpfchen-Aktivierung der Aerosol-Partikel geschieht im oberen, warmen Teil von IMCA, wobei Übersättigung in Bezug auf flüssiges Wasser durch Befeuchtung der Wände und Einstellen verschiedener Wandtemperaturen erreicht wird. Mittels numerischer Strömungssimulationen wurden geeignete Kammerdimensionen und experimentelle Parameter ermittelt, damit die aktivierten Tröpfchen zu ausreichender Grösse anwachsen können, um in den untersättigten Bereichen des Experiments nicht vollständig zu verdunsten.

Erste Experimente mit IMCA zum Immersions-Gefrieren von Wolkentröpfchen konnten erfolgreich durchgeführt werden. Mit grössen-selektionierten Kaolinitpartikeln zwischen 200 nm und 800 nm Durchmesser wurden mittlere Gefriertemperaturen zwischen -35°C für 200 nm Partikel und -33°C für 800 nm Partikel gemessen. Obwohl der Einfluss der Partikelgrösse auf die Gefriertemperatur nicht sehr stark ist, so ist er doch klar erkennbar. Oberhalb der mittleren Gefriertemperatur fällt der Anteil gefrorener Tröpfchen mit steigender Temperatur langsamer ab, als die Nukleationstheorie erwarten lässt. Dies gibt Anlass zur Vermutung, dass ein kleiner Teil der Eiskristalle, die vom Detektor identifiziert werden, via Depositionsnukleation entstehen. Obwohl die Berechnung der Tröpfchen-Evolution basierend auf den CFD-Simulationen kein Verdunsten der Tröpfchen voraussagt, bevor diese den Detektor erreichen, ist es doch wahrscheinlich, dass eine gewisse Anzahl unaktivierter Aerosolpartikel im System präsent sind. Dieser Widerspruch zur Berechnung ist wahrscheinlich darin begründet, dass in der Berechnung vereinfachend eine unmittelbare Wolkentröpfchen-Aktivierung angenommen wird, sobald die Partikel in den übersättigten Bereich von IMCA eintreten. Der Beitrag von Depositionsnukleation zur Anzahl gemessener Eiskristalle wurde abgeschätzt und vom Messwert abgezogen, um den Mechanismus des Immersionsgefrierens zu isolieren.

Der gemessene Anteil gefrorener Tröpfchen wurde zudem mit verschiedenen theoretischen Mod-

ellen gefittet, welche verschiedene Beschreibungen der IN-Oberfläche beinhalten. Die Annahme eines konstanten Kontaktwinkels zwischen IN und Eis-Embryo für alle IN ergibt einen mangelhaften Fit an die gemessenen Daten. Die besten Fits wurden mit Modellen erzielt, welche “aktive Stellen”, d. h. bevorzugte Stellen für Eiskernung, von verschiedener Effizienz auf der IN-Oberfläche verteilen. Die resultierenden Fits legen den Schluss nahe, dass die Abhängigkeit der IN-Effizienz von der Partikelgrösse nicht allein in der grösseren Oberfläche grösserer Partikel begründet ist, sondern auch in der erhöhten Wahrscheinlichkeit für effiziente aktive Stellen auf einer grösseren Oberfläche. Weitere Experimente zur Zeitabhängigkeit des Gefrierens von Tröpfchen sind notwendig, um zu entscheiden, ob ein Modell zur Beschreibung von Immersionsgefrieren auf der klassischen Nukleationstheorie basieren sollte, oder ob ein einfacheres, deterministisches Modell ausreicht.